

## 明 細 書

### 軟磁性材料の製造方法、軟磁性粉末および圧粉磁心

#### 技術分野

- [0001] この発明は、一般的には、軟磁性材料の製造方法、軟磁性粉末および圧粉磁心に関し、より特定のには、絶縁被膜によって覆われた複数の軟磁性粒子を備える軟磁性材料の製造方法、軟磁性粉末および圧粉磁心に関する。

#### 背景技術

- [0002] 従来、モーターコアやトランスコアなどの電気電子部品において高密度化および小型化が図られており、より精密な制御を小電力で行えることが求められている。このため、これらの電気電子部品の作製に使用される軟磁性材料であって、特に中高周波領域において優れた磁気的特性を有する軟磁性材料の開発が進められている。
- [0003] このような軟磁性材料に関して、たとえば、特開2002-246219号公報には、高い温度環境下の使用に際しても磁気特性が維持できることを目的とした圧粉磁心およびその製造方法が開示されている(特許文献1)。特許文献1に開示された圧粉磁心の製造方法によれば、まず、リン酸被膜処理アトマイズ鉄粉に所定量のポリフェニレンサルファイド(PPS樹脂)を混合し、これを圧縮成形する。得られた成形体を空気中において温度320℃で1時間加熱し、さらに温度240℃で1時間加熱する。その後、冷却することによって圧粉磁心を作製する。

特許文献1: 特開2002-246219号公報

#### 発明の開示

#### 発明が解決しようとする課題

- [0004] このように作製された圧粉磁心の内部に、多数の結晶不連続点(転位、粒界、欠陥)が存在する場合、これらの結晶不連続点は磁壁移動(磁束変化)の妨げとなるため、圧粉磁心の透磁率を低下させ、保磁力を増大させる原因となる。特許文献1に開示された圧粉磁心では、二度に渡って成形体を実施される熱処理によっても内部に存在する結晶不連続点が十分に解消されていない。このため、得られた圧粉磁心の実効透磁率は、周波数やPPS樹脂の含有量によっても変化するが、常に400以下の

低い値にとどまっている。

[0005] また、圧粉磁心の内部に存在する結晶不連続点を十分に低減させるため、成形体を実施する熱処理の温度を1000℃以上の高温にすることが考えられる。しかし、アトマイズ鉄粉を覆うリン酸化合物は、耐熱性に劣っているため、温度を高く設定すると熱処理時に劣化する。これにより、リン酸被膜処理アトマイズ鉄粉の粒子間渦電流損が増大し、圧粉磁心の透磁率が低下するおそれが生じる。

[0006] そこでこの発明の目的は、上記の課題を解決することであり、所望の磁気的特性が得られる軟磁性材料の製造方法、軟磁性粉末および圧粉磁心を提供することである。

#### 課題を解決するための手段

[0007] 圧粉磁心の内部に存在する結晶不連続点には、軟磁性粉末の加圧成形時に導入される転位に代表される歪みのほか、軟磁性粒子の表面に沿って形成される表層微結晶の粒界や、軟磁性粒子の内部に形成される副結晶の粒界が含まれる。これらの結晶粒界は、たとえば、軟磁性粉末を作製するためのアトマイズ工程時において、軟磁性粉末を強制急冷する際の熱応力歪みによって形成される。

[0008] これらの結晶粒界は、軟磁性粉末の保磁力を著しく増大させる因子となっている。しかし、これらの結晶粒界は、元々エネルギー的に安定しているため、たとえば1000℃以上の高温の熱処理によってしか解消させることができない。そこで、発明者等は、軟磁性粒子の表面に沿って形成されている表層微結晶に注目することで、比較的低い温度の熱処理であっても保磁力を十分に低減させることができる本発明を完成させるに至った。

[0009] この発明の1つの局面に従った軟磁性材料の製造方法は、複数の軟磁性粒子を含む軟磁性粉末を準備する工程と、軟磁性粉末をエッチングすることによって、軟磁性粒子の表面を除去する工程と、エッチングする工程の後、粉末状の軟磁性粉末を400℃以上900℃以下の温度で第1の熱処理をする工程とを備える。

[0010] このように構成された軟磁性材料の製造方法によれば、第1の熱処理の前に予め、軟磁性粉末をエッチングすることによって、表層微結晶が形成された軟磁性粒子の表面を取り除くことができる。これにより、表層微結晶の粒界が存在しない軟磁性粉

末に対して第1の熱処理を実施できるため、第1の熱処理によって、残る結晶不連続点を効果的に消滅させることができる。結果、保磁力が十分に小さい軟磁性粉末を得ることができる。

- [0011] この際、熱処理の温度を400℃以上にすることにより、第1の熱処理による上述の効果を十分に得ることができる。また、熱処理の温度を900℃以下にすることにより、熱処理時に軟磁性粉末が焼結し、固まってしまうことを防止できる。軟磁性粉末が焼結すると、固まった軟磁性粉末を機械的に細かくする必要がある、この際に軟磁性粒子の内部に新たな歪みを発生させるおそれが生じる。このため、熱処理の温度を900℃以下にすることによって、このようなおそれを回避することができる。
- [0012] また好ましくは、エッチングする工程の後、軟磁性粉末は、10  $\mu$  m以上400  $\mu$  m以下の範囲にのみ実質的に存在する粒度分布を有する。このように構成された軟磁性材料の製造方法によれば、軟磁性粉末の粒径分布を10  $\mu$  m以上にすることで、「表面エネルギーによる応力歪み」の影響を抑制することができる。ここで言う「表面エネルギーによる応力歪み」とは、軟磁性粒子の表面に存在する歪みや欠陥に起因して発生する応力歪みのことであり、その存在は、磁壁の移動を妨げる原因となる。このため、この影響を抑制することによって、軟磁性粉末の保磁力を小さくすることができる。加えて、粒径分布を10  $\mu$  m以上にすることで、軟磁性粉末が固まった状態になることを防止できる。また、粒径分布を400  $\mu$  m以下にすることで、本発明による製造方法を用いて圧粉磁心を作製した場合に、圧粉磁心の粒子内渦電流損を低減させることができる。これにより、粒子内渦電流損に起因する圧粉磁心の鉄損を低減させることができる。
- [0013] また好ましくは、エッチングする工程は、準備する工程により準備された軟磁性粉末の平均粒径に対して、平均粒径が90%以上の値に低減する範囲で、軟磁性粒子の表面を除去する工程を含む。このように構成された軟磁性材料の製造方法によれば、軟磁性粒子が元々の平均粒径に対して小さくなりすぎて、形状反磁界の影響が大きくなることを防止でき、また「表面エネルギーによる応力歪み」の影響が増大することを防止できる。これにより、得られる軟磁性粉末の保磁力を小さくすることができる。
- [0014] この発明に従った軟磁性粉末は、上述のいずれかに記載の軟磁性材料の製造方

法を用いて作製された軟磁性粉末である。この軟磁性粉末は、準備する工程により準備された軟磁性粉末の保磁力に対して、70%以下の値に低減された保磁力を有する。本発明による軟磁性材料の製造方法を用いることによって、軟磁性粉末の保磁力を元々の値から70%以下の値に低減させることができる。

- [0015] また好ましくは、軟磁性材料の製造方法は、第1の熱処理をする工程の後、複数の軟磁性粒子の各々に絶縁被膜を形成する工程と、絶縁被膜が形成された複数の軟磁性粒子を加圧成形することによって、成形体を形成する工程とをさらに備える。このように構成された軟磁性材料の製造方法によれば、第1の熱処理の後に絶縁被膜を形成するため、第1の熱処理によって絶縁被膜が劣化するということがない。
- [0016] また、結晶不連続点が十分に解消された軟磁性粉末を用いて成形体を形成するため、成形体の内部に存在する結晶不連続点は、そのほとんどが加圧成形時に生じる歪みによるものとなる。このため、成形体の内部に存在する結晶不連続点を少なくすることができる。さらに、結晶不連続点が低減された軟磁性粒子は、加圧成形時に変形しやすい状態になっている。このため、複数の軟磁性粒子が互いに隙間なく噛み合った状態の成形体を得ることができ、成形体の密度を大きくすることができる。
- [0017] また好ましくは、軟磁性材料の製造方法は、成形体を形成する工程の前に、軟磁性粉末に有機物を添加する工程をさらに備える。このように構成された軟磁性材料の製造方法によれば、加圧成形時、絶縁被膜が形成された軟磁性粒子の各々の間には、有機物が介在する。このため、有機物は、加圧成形時に潤滑剤としての機能を発揮し、絶縁被膜が破壊されることを抑制する。また、加圧成形後において、有機物は、軟磁性粒子を互いに接合する役割を果たす。これにより、成形体の強度を向上させることができる。
- [0018] また好ましくは、軟磁性材料の製造方法は、成形体を、30℃以上絶縁被膜の熱分解温度未満の温度で第2の熱処理をする工程をさらに備える。このように構成された軟磁性材料の製造方法によれば、第2の熱処理によって、成形体の内部に存在する結晶不連続点を低減させることができる。この際、第1の熱処理によって、軟磁性粉末の内部に存在する結晶不連続点は、予め十分に低減されている。このため、成形体の内部に存在する結晶不連続点は、そのほとんどが加圧成形時に生じた歪みによ

るものである。したがって、絶縁被膜の熱分解温度未満、たとえば、リン酸系絶縁被膜の場合では500℃未満という比較的低い熱処理温度であっても、成形体の内部に存在する歪みを十分に低減させることができる。

[0019] 加えて、第2の熱処理では、熱処理時の温度が絶縁被膜の熱分解温度未満であるため、軟磁性粒子を取り囲む絶縁被膜が劣化することを抑制できる。これにより、適切に保護された絶縁被膜によって、軟磁性粒子間で発生する粒子間渦電流損を低減させることができる。また、熱処理温度を30℃以上とすることで、第2の熱処理による上述の効果を一定の水準で得ることができる。

[0020] この発明に従った圧粉磁心は、上述の軟磁性材料の製造方法を用いて作製された圧粉磁心である。圧粉磁心は、 $1.0 \times 10^2 \text{ A/m}$ 以下の保磁力を有する。このように構成された圧粉磁心によれば、保磁力が十分に小さいため、圧粉磁心のヒステリシス損を低減させることができる。これにより、鉄損に占めるヒステリシス損の割合が大きくなる低周波領域においても、圧粉磁心を有効に利用することができる。

#### 発明の効果

[0021] 以上説明したように、この発明に従えば、所望の磁気的特性が得られる軟磁性材料の製造方法、軟磁性粉末および圧粉磁心を提供することができる。

#### 図面の簡単な説明

[0022] [図1]この発明の実施の形態における軟磁性材料の製造方法を用いて作製された圧粉磁心の断面を示す模式図である。

[図2]図1中の圧粉磁心を製造するアトマイズ工程において、得られる軟磁性粒子の状態を示す模式図である。

[図3]図2中に模式的に示した軟磁性粒子のSEM-EBSP像(scanning electron microscope-electron back scattering pattern)写真である。

[図4]図3中の2点鎖線IVで囲まれた範囲を示す軟磁性粒子の拡大図である。

[図5]図1中の圧粉磁心を製造するエッチング工程において、得られる軟磁性粒子の状態を示す模式図である。

[図6]図1中の圧粉磁心を製造する第1の熱処理工程において、得られる軟磁性粒子の状態を示す模式図である。

[図7]図1中の圧粉磁心を製造する加圧成形工程において、得られる軟磁性粒子の状態を示す模式図である。

[図8]図1中の圧粉磁心を製造する第2の熱処理工程において、得られる軟磁性粒子の状態を示す模式図である。

[図9]この発明の実施例2において、熱処理温度と軟磁性粉末の保磁力との関係を示すグラフである。

### 符号の説明

[0023] 10 軟磁性粒子、10a 表面、20 絶縁被膜、30 複合磁性粒子、40 有機物。

### 発明を実施するための最良の形態

[0024] この発明の実施の形態について、図面を参照して説明する。

[0025] 図1を参照して、圧粉磁心は、軟磁性粒子10と、軟磁性粒子10の表面を取り囲む絶縁被膜20とから構成された複数の複合磁性粒子30を備える。複数の複合磁性粒子30の間には、有機物40が介在している。複数の複合磁性粒子30の各々は、有機物40によって接合されていたり、複合磁性粒子30が有する凹凸の噛み合わせによって接合されている。有機物40は、複合磁性粒子30同士を強固に接合して、圧粉磁心の強度を向上させている。

[0026] 軟磁性粒子10は、たとえば、鉄(Fe)、鉄(Fe)－シリコン(Si)系合金、鉄(Fe)－窒素(N)系合金、鉄(Fe)－ニッケル(Ni)系合金、鉄(Fe)－炭素(C)系合金、鉄(Fe)－ホウ素(B)系合金、鉄(Fe)－コバルト(Co)系合金、鉄(Fe)－リン(P)系合金、鉄(Fe)－ニッケル(Ni)－コバルト(Co)系合金および鉄(Fe)－アルミニウム(Al)－シリコン(Si)系合金などから形成することができる。軟磁性粒子10は、金属単体でも合金でもよい。

[0027] 絶縁被膜20は、たとえば、軟磁性粒子10をリン酸処理することによって形成されている。また好ましくは、絶縁被膜20は、酸化物を含有する。この酸化物を含有する絶縁被膜20としては、リンと鉄とを含むリン酸鉄の他、リン酸マンガン、リン酸亜鉛、リン酸カルシウム、リン酸アルミニウム、酸化シリコン、酸化チタン、酸化アルミニウムまたは酸化ジルコニウムなどの酸化物絶縁体を使用することができる。絶縁被膜20は、図中に示すように1層に形成されていても良いし、多層に形成されていても良い。

- [0028] 絶縁被膜20は、軟磁性粒子10間の絶縁層として機能する。軟磁性粒子10を絶縁被膜20で覆うことによって、圧粉磁心の電気抵抗率 $\rho$ を大きくすることができる。これにより、軟磁性粒子10間に渦電流が流れるのを抑制して、渦電流に起因する圧粉磁心の鉄損を低減させることができる。
- [0029] 有機物40としては、熱可塑性ポリイミド、熱可塑性ポリアミド、熱可塑性ポリアミドイミド、ポリフェニレンサルファイド、ポリアミドイミド、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルイミドまたはポリエーテルエーテルケトンなどの熱可塑性樹脂や、全芳香族ポリエステルまたは全芳香族ポリイミドなどの非熱可塑性樹脂や、高分子量ポリエチレン、ステアリン酸亜鉛、ステアリン酸リチウム、ステアリン酸カルシウム、パルミチン酸リチウム、パルミチン酸カルシウム、オレイン酸リチウムおよびオレイン酸カルシウムなどの高級脂肪酸を用いることができる。また、これらを互いに混合して用いることもできる。なお、高分子量ポリエチレンとは、分子量が10万以上のポリエチレンをいう。
- [0030] 続いて、図2から図8を用いて、本実施の形態における軟磁性材料の製造方法について説明を行なう。
- [0031] 図2を参照して、まず、アトマイズ法を用いて、複数の軟磁性粒子10から構成される軟磁性粉末を作製する。より具体的には、溶解された原料金属を、高圧の水を利用して噴霧しながら急冷することによって粉末状とし、複数の軟磁性粒子10を作製する。このような急冷工程を経て得られた軟磁性粒子10には、結晶間に延びる結晶粒界51のほか、表面10aに沿って所定の深さで形成された表層微結晶57と、表層微結晶57間に延びる表層微結晶粒界53と、軟磁性粒子10の内部に形成された副結晶56と、副結晶56間に延びる副結晶粒界52とが存在する。なお、軟磁性粉末を作製する方法は、水アトマイズ法に限定されず、ガスアトマイズ法であっても良い。
- [0032] 図3および図4中には、水アトマイズ法により作製された純度99.8%以上のアトマイズ鉄粉が示されている。図3および図4を参照して、水アトマイズ法を用いた場合、100 $\mu$ m程度の直径を有する軟磁性粒子10では、その表面から100nmから250nm程度の深さに渡って表層微結晶57が形成される。一方、ガスアトマイズ法を用いて軟磁性粉末を作製した場合、表層微結晶が形成される深さは、比較的浅くなり、100 $\mu$ m程度の直径に対して10nm前後の深さとなる。但し、ここに挙げた表層微結晶が

形成される深さは一例であり、軟磁性粒子の材質や粒径、軟磁性粉末を作製する条件等によって変化する。

[0033] 図5を参照して、次に、塩化水素(HCl)水溶液(塩酸)に軟磁性粉末を投入し、所定時間、攪拌処理することによって、軟磁性粉末にエッチング処理を行なう。この場合、塩酸のほかに、リン酸( $\text{H}_3\text{PO}_4$ )、硝酸( $\text{HNO}_3$ )、硫酸( $\text{H}_2\text{SO}_4$ )およびこれらの混合液を用いることもできる。また、これらの水溶液を用いた酸処理のほかに、たとえば、イオンミリング装置を用いて実施するアルゴンイオンミリング法や、プラズマ中にて反応性ガスの活性種を用いる反応性イオンエッチング法などを利用することもできる。

[0034] このようなエッチング処理により、表面10aから所定の深さに渡って、軟磁性粒子10の表面が除去され、これに伴い、軟磁性粒子10に形成されていた表層微結晶57が軟磁性粒子10から取り除かれる。この際、エッチング処理後の軟磁性粉末の平均粒径が、エッチング処理前の軟磁性粉末の平均粒径の90%以上の値となるように、エッチング処理を実施することが好ましい。ここで言う平均粒径とは、レーザー散乱回折法などによって測定した粒径のヒストグラム中、粒径の小さいほうからの質量の和が総質量の50%に達する粒子の粒径、つまり50%粒径Dをいう。

[0035] またエッチング処理後において、軟磁性粒子10の粒径は、 $10\mu\text{m}$ 以上 $400\mu\text{m}$ 以下の範囲にのみ実質的に分布していることが好ましい。この場合、エッチング処理後の軟磁性粉末から、適当なメッシュ粗さの篩を用いて、 $10\mu\text{m}$ 未満の粒径を有する粒子と $400\mu\text{m}$ を超える粒径を有する粒子とを強制的に排除すれば良い。軟磁性粒子10の粒径は、 $75\mu\text{m}$ 以上 $355\mu\text{m}$ 以下の範囲にのみ実質的に分布していることがさらに好ましい。

[0036] 次に、エッチング処理された軟磁性粉末を水洗し、その後、アセトンにより水分を置換することによって、軟磁性粉末を乾燥させる。

[0037] 図6を参照して、次に、軟磁性粉末を $400^\circ\text{C}$ 以上 $900^\circ\text{C}$ 以下の温度で、たとえば1時間、熱処理する。熱処理の温度は、 $700^\circ\text{C}$ 以上 $900^\circ\text{C}$ 以下であることがさらに好ましい。この熱処理によって、軟磁性粒子10の内部に形成されている副結晶粒界52や、軟磁性粒子10の新たな表面10bに表層微結晶が残存している場合には、その



表層微結晶による結晶粒界を解消させる。この際、先の工程で実施したエッチング処理により、表層微結晶の全てまたはその大部分が予め除去されているため、軟磁性粒子10の内部に存在する結晶不連続点を効果的に解消することができる。

- [0038] 図7を参照して、軟磁性粒子10の表面10bに絶縁被膜20を形成し、複合磁性粒子30を作製する。次に、得られた複合磁性粒子30に有機物40を添加し、これらを混合することによって混合粉末を得る。なお、混合方法に特に制限はなく、たとえばメカニカルアロイング法、振動ボールミル、遊星ボールミル、メカノフュージョン、共沈法、化学気相蒸着法(CVD法)、物理気相蒸着法(PVD法)、めっき法、スパッタリング法、蒸着法またはゾルーゲル法などのいずれを使用することも可能である。
- [0039] 次に、得られた混合粉末を金型に入れ、たとえば、700MPaから1500MPaまでの圧力で加圧成形する。これにより、混合粉末が圧縮されて成形体が得られる。加圧成形する雰囲気は、不活性ガス雰囲気または減圧雰囲気とすることが好ましい。この場合、大気中の酸素によって混合粉末が酸化されるのを抑制できる。この加圧成形によって、軟磁性粒子10には、歪み61が新たに形成される。
- [0040] この際、軟磁性粒子10の内部に元々、存在する表層微結晶粒界53や副結晶粒界52は、図5を用いて説明したエッチング処理や図6を用いて説明した熱処理によって、その大部分が消滅させられている。このため、複合磁性粒子30は、加圧成形時において変形しやすい状態とされている。このため、図1に示すように複数の複合磁性粒子30が互いに噛み合った隙間のない状態に成形体を形成することができる。これにより、成形体の密度を大きくし、高い透磁率を得ることができる。また、有機物40は、隣り合う複合磁性粒子30間に位置して潤滑剤として機能し、複合磁性粒子30同士が擦れ合って絶縁被膜20が破壊されることを防止する。
- [0041] 図8を参照して、次に、加圧成形によって得られた成形体を、30℃以上絶縁被膜20の熱分解温度未満の温度で熱処理する。絶縁被膜20の熱分解温度は、たとえばリン酸系絶縁被膜の場合、500℃である。
- [0042] この際、軟磁性粒子10の内部に元々、存在する表層微結晶粒界53や副結晶粒界52は、その大部分が消滅させられているため、加圧成形後においても、成形体の内部に存在する結晶不連続点の量は、比較的少ない。また、加圧成形時、軟磁性粒子

10の内部には結晶不連続点がほとんど存在しないため、新たな歪み61は、これらの結晶不連続点と複雑に絡み合うことなく形成されている。これらの理由から、絶縁被膜20の熱分解温度未満という比較的低い温度で熱処理しているにもかかわらず、成形体の内部に存在する結晶不連続点を、容易に低減させることができる。

[0043] また、成形体に対する熱処理は絶縁被膜20の熱分解温度未満の温度で実施されているため、熱処理によって絶縁被膜20が劣化するということがない。これにより、熱処理後においても絶縁被膜20が軟磁性粒子10を覆う状態が保持され、絶縁被膜20によって軟磁性粒子10間に渦電流が流れるのを確実に抑制することができる。さらに好ましくは、加圧成形によって得られた成形体を、30℃以上300℃以下の温度で熱処理する。この場合、絶縁被膜20の劣化をさらに抑制することができる。

[0044] その後、得られた成形体に押出し加工や切削加工など適当な加工を施すことによって、図1中に示す圧粉磁心が完成する。

[0045] この発明の実施の形態における軟磁性材料の製造方法は、複数の軟磁性粒子10を含む軟磁性粉末を準備する工程と、軟磁性粉末をエッチングすることによって、軟磁性粒子10の表面10aを除去する工程と、エッチングする工程の後、粉末状の軟磁性粉末を400℃以上900℃以下の温度で熱処理をする工程とを備える。

[0046] このように構成された軟磁性材料の製造方法によれば、加圧成形前の軟磁性粒子10に対して、エッチング処理を行ない、さらに所定の温度範囲で熱処理を実施することによって、結晶不連続点が十分に解消された圧粉磁心を作製することができる。これにより、圧粉磁心のヒステリシス損を低減することができる。また、軟磁性粉末に対する熱処理は、軟磁性粒子10に絶縁被膜20を形成する前に行なわれるため、その熱処理によって絶縁被膜20が劣化するということがない。さらに、成形体に対する熱処理は、絶縁被膜20の熱分解温度未満の温度で実施されているため、その熱処理によって絶縁被膜20が劣化することも抑制されている。このため、絶縁被膜20を軟磁性粒子10間の絶縁層として十分に機能させ、圧粉磁心の渦電流損を低減させることができる。結果、ヒステリシス損および渦電流損の低減を通じて、圧粉磁心の鉄損を大幅に小さくすることができる。

実施例

[0047] 以下に説明する実施例によって、本発明における軟磁性材料の製造方法の評価を行なった。

[0048] (実施例1)

まず、実施の形態に記載の製造方法に従って、軟磁性粉末に対してエッチング処理を行なった。この際、軟磁性粒子10としては、純度99.8%以上の水アトマイズ鉄粉(ヘガネス社製の商品名「ABC100.30」)を用いた。また、エッチング処理は、3質量%の濃度の塩化水素水溶液(600cm<sup>3</sup>)を準備し、その水溶液に200gの軟磁性粉末を投入し、攪拌処理することによって実施した。この際、攪拌時間を10分から300分間の範囲で変化させ、エッチング条件の異なる複数の軟磁性粉末を作製した。また、比較のため、エッチング処理を実施しない軟磁性粉末も準備した。

[0049] このように作製された軟磁性粉末の平均粒径と保磁力とを測定した。保磁力の測定に際しては、まず、樹脂バインダーを用いて軟磁性粉末を固め、ペレット(直径20mm、厚み5mm)を作製した。そのペレットに対して、1(T:テスラ)→-1T→1T→-1Tの磁場を順に印加するとともに、試料振動型磁力計(VSM)を用いてそのときのB(磁場)H(磁界)ループの形状を特定した。そして、このBHループの形状からペレットの保磁力を算出し、その値を軟磁性粉末の保磁力とした。

[0050] 次に、軟磁性粉末に対して、水素気流中、温度850℃、1時間の条件で、熱処理を実施した。熱処理後の軟磁性粉末の保磁力を、上述と同様の方法により測定した。

[0051] 次に、軟磁性粉末に被膜処理を実施し、軟磁性粒子10の表面に絶縁被膜20としてのリン酸鉄被膜を形成した。被膜処理された軟磁性粉末に、ポリフェニレンサルファイド(PPS樹脂)を、軟磁性粉末に対して1質量%の割合で添加し、これらを混合した。得られた混合粉末を面圧13ton/cm<sup>2</sup>でプレス成形し、リング状(外径34mm、内径20mm、厚み5mm)の成形体を作製した。得られた成形体にコイル(1次巻き数が300回、2次巻き数が20回)を設け、磁場を印加することによって、成形体の保磁力および透磁率を測定した。

[0052] 次に、成形体に対して、窒素気流中、温度550℃、1時間の条件で熱処理を実施した。熱処理後の成形体の保磁力および透磁率を、上述と同様の方法により測定した。以上の測定により得られた軟磁性粉末および成形体の保磁力、透磁率の値を表1

に示した。

[0053] [表1]

攪拌 時間 (分)	軟磁性粉末				成形体			
	エッチング 処理後 の平均粒径 ( $\mu\text{m}$ )	エッチング 処理後 の保磁力 (Oe)	熱処理後 の保磁力 (Oe)	熱処理後 の保磁力 (Oe)	加圧成形後 の保磁力 (Oe)	加圧成形後 の透磁率	熱処理後 の保磁力 (Oe)	熱処理後 の透磁率
0	83	2.86	2.20	2.20	4.28	573	1.52	954
10	82	2.84	2.16	2.16	4.22	582	1.46	1008
20	80	2.77	2.11	2.11	4.13	596	1.42	1066
30	80	2.54	1.95	1.95	3.74	635	1.26	1164
40	76	2.61	2.03	2.03	3.96	615	1.30	1122
60	76	2.74	2.10	2.10	4.01	566	1.36	1040
90	74	2.96	2.23	2.23	4.19	530	1.55	922
120	70	3.11	2.29	2.29	4.25	508	1.62	901
150	68	3.14	2.27	2.27	4.26	482	1.69	888
180	67	3.13	2.31	2.31	4.29	468	1.80	842
240	63	3.25	2.36	2.36	4.30	452	1.83	831
300	59	3.37	2.42	2.42	4.38	429	1.86	779

[0054] 表1を参照して分かるように、攪拌時間を60分以下とした軟磁性粉末では、エッチング処理を行なう前の平均粒径に対して90%以上の値に維持された平均粒径が得

られた。この場合、エッチング処理を行なわなかった軟磁性粉末と比較して、熱処理後の保磁力を小さくすることができた。また特に、攪拌時間が30分から40分の範囲で、より効果的に保磁力を小さくすることができた。なお、攪拌時間が60分間以上の範囲で、攪拌時間の増加とともに保磁力が増大したのは、軟磁性粒子10の粒径が小さくなりすぎて、形状反磁界や表面エネルギーによる応力歪みの影響が、エッチングにより表層微結晶粒界を解消した効果を上回ったためと考えられる。

[0055] より詳細には、加工を行なわなかった場合、軟磁性粉末の元々の保磁力は、2.86 (Oe:エルステッド)であり、熱処理を実施することによって、その保磁力が、77%程度の2.20 (Oe)となった。一方、エッチング時に30分間の攪拌処理を行なった場合、熱処理後の保磁力は、2.86 (Oe)に対して68%程度の値の1.95 (Oe)となった。これにより、本発明に従えば、軟磁性粉末の保磁力を70%以下の値まで低減できることを確認できた。

[0056] このような軟磁性粉末の保磁力の低減と相伴って、加圧成形によって得られた成形体およびさらに熱処理が実施された成形体の保磁力を小さくし、透磁率を大きくすることができた。特に加工時間を30分から40分の範囲とした場合には、熱処理後の成形体の保磁力を、1.30 (Oe) ( $=1.0 \times 10^2 \text{ A/m}$ )以下の値まで小さくすることができた。

[0057] (実施例2)

本実施例では、実施例1で使用した、エッチング処理を実施しなかった軟磁性粉末と、エッチング処理時の攪拌時間を30分とした軟磁性粉末とに対して、水素気流中、1時間の条件で、熱処理温度を変化させて熱処理を行なった。その後、それぞれの熱処理温度で処理された軟磁性粉末の保磁力を、実施例1と同様の方法により測定した。測定により得られた保磁力の値を表2に示すとともに、図9にその値をプロットして示した。

[0058] [表2]

軟磁性粉末に 実施する第1の 熱処理の温度(°C)	攪拌時間 0(分)	攪拌時間 30(分)
	熱処理後の 軟磁性粉末の 保磁力 (0e)	熱処理後の 軟磁性粉末の 保磁力 (0e)
25	2.86	2.54
250	2.82	2.52
300	2.78	2.49
350	2.74	2.46
400	2.68	2.41
450	2.62	2.36
500	2.55	2.29
550	2.48	2.2
600	2.4	2.13
650	2.33	2.08
700	2.28	2
750	2.23	1.98
800	2.21	1.94
850	2.2	1.95
900	2.26 (要粉碎)	2.52 (要粉碎)
950	2.66 (要粉碎)	測定不可 (粉碎不可)
1000	測定不可 (粉碎不可)	測定不可 (粉碎不可)

[0059] 表2および図9を参照して、熱処理温度を900°Cにした場合、熱処理によって軟磁性粉末が軽く固まり、軽微な粉碎加工を行なう必要が生じた。結果、測定された保磁力の値が大きくなった。また、熱処理温度を900°Cを超える値とした場合には、粉碎不可能なほどに軟磁性粉末が堅く固まる場合が生じた。また、粉碎できた場合にも、測定された保磁力の値が大きく増大した。このことから、軟磁性粉末に行なう熱処理時の温度を、900°C以下の温度、たとえば実施例1で実施したように850°Cに設定することで、軟磁性粉末の保磁力の低減が図られることを確認できた。

[0060] 今回開示された実施の形態および実施例はすべての点で例示であって制限的なものではないと考えられるべきである。本発明の範囲は上記した説明ではなくて請求の範囲によって示され、請求の範囲と均等の意味および範囲内でのすべての変更が含まれることが意図される。

### 産業上の利用可能性

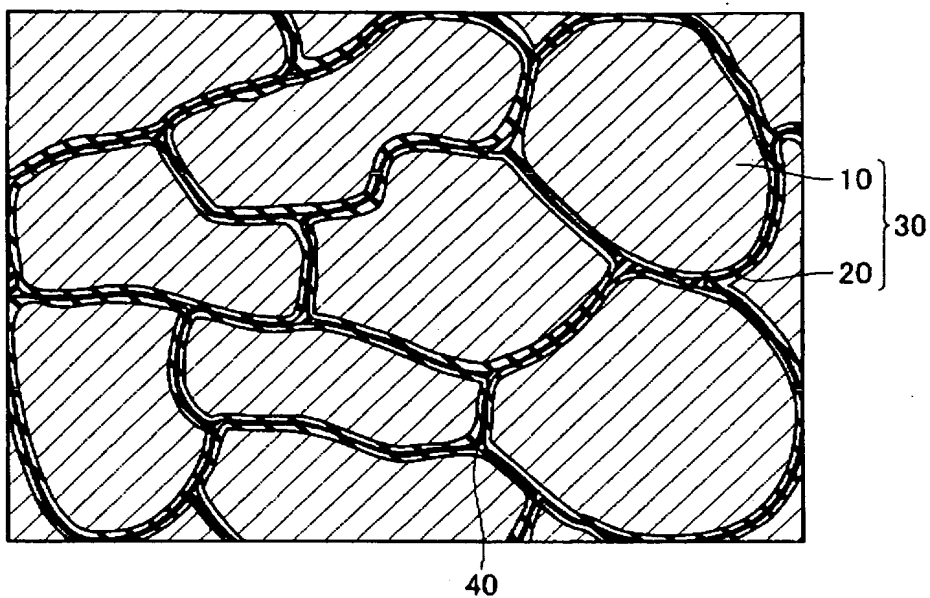
[0061] この発明は、たとえば、軟磁性粉末が加圧成形されて作製されるモーターコア、電磁弁、リアクトルもしくは電磁部品一般の製造に利用される。

## 請求の範囲

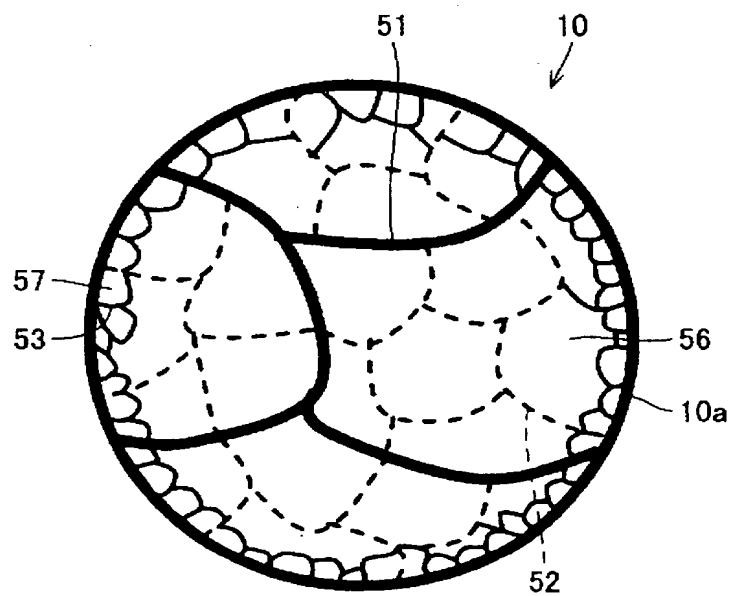
- [1] 複数の軟磁性粒子(10)を含む軟磁性粉末を準備する工程と、  
前記軟磁性粉末をエッチングすることによって、前記軟磁性粒子(10)の表面(10a)を除去する工程と、  
前記エッチングする工程の後、粉末状の前記軟磁性粉末を400℃以上900℃以下の温度で第1の熱処理をする工程とを備える、軟磁性材料の製造方法。
- [2] 前記エッチングする工程の後、前記軟磁性粉末は、10  $\mu$  m以上400  $\mu$  m以下の範囲にのみ実質的に存在する粒度分布を有する、請求項1に記載の軟磁性材料の製造方法。
- [3] 前記エッチングする工程は、前記準備する工程により準備された軟磁性粉末の平均粒径に対して、平均粒径が90%以上の値に低減する範囲で、前記軟磁性粒子(10)の表面(10a)を除去する工程を含む、請求項1に記載の軟磁性材料の製造方法。
- [4] 請求項1に記載の軟磁性材料の製造方法を用いて作製された軟磁性粉末であって、  
前記準備する工程により準備された軟磁性粉末の保磁力に対して、70%以下の値に低減された保磁力を有する、軟磁性粉末。
- [5] 前記第1の熱処理をする工程の後、前記複数の軟磁性粒子(10)の各々に絶縁被膜(20)を形成する工程と、  
前記絶縁被膜(20)が形成された前記複数の軟磁性粒子(10)を加圧成形することによって、成形体を形成する工程とをさらに備える、請求項1に記載の軟磁性材料の製造方法。
- [6] 前記成形体を形成する工程の前に、前記軟磁性粉末に有機物(40)を添加する工程をさらに備える、請求項5に記載の軟磁性材料の製造方法。
- [7] 前記成形体を、30℃以上前記絶縁被膜(20)の熱分解温度未満の温度で第2の熱処理をする工程をさらに備える、請求項5に記載の軟磁性材料の製造方法。
- [8] 請求項7に記載の軟磁性材料の製造方法を用いて作製され、 $1.0 \times 10^2$  A/m以下の保磁力を有する、圧粉磁心。



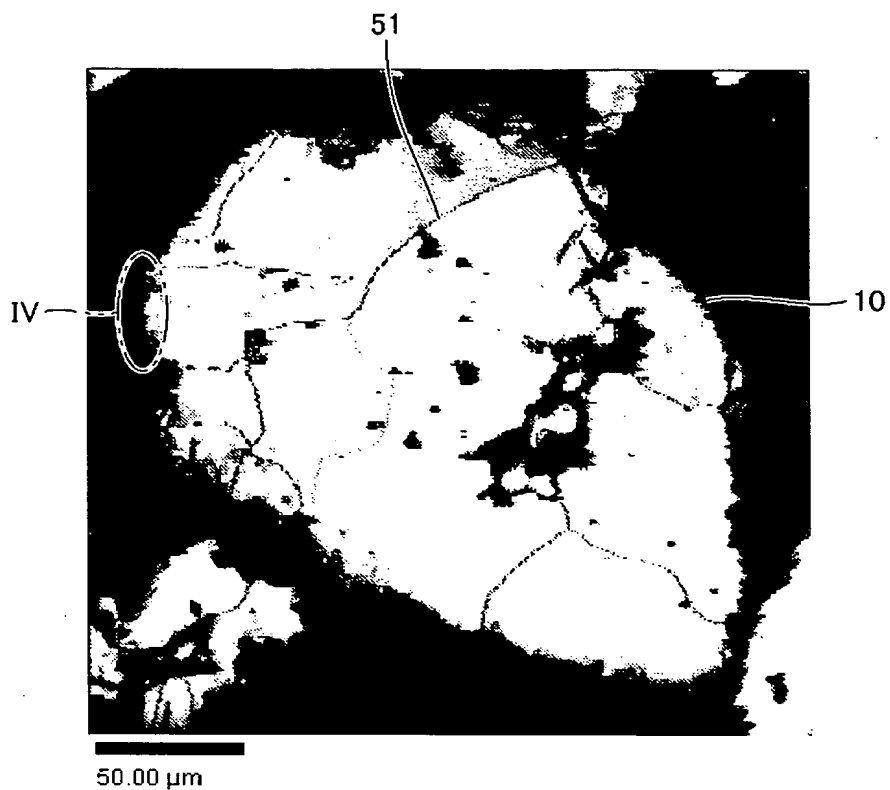
[図1]



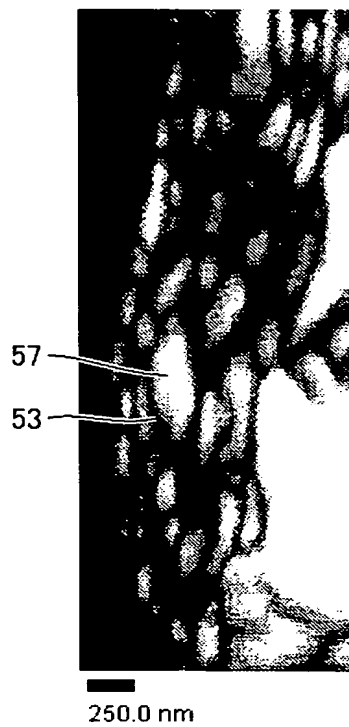
[図2]



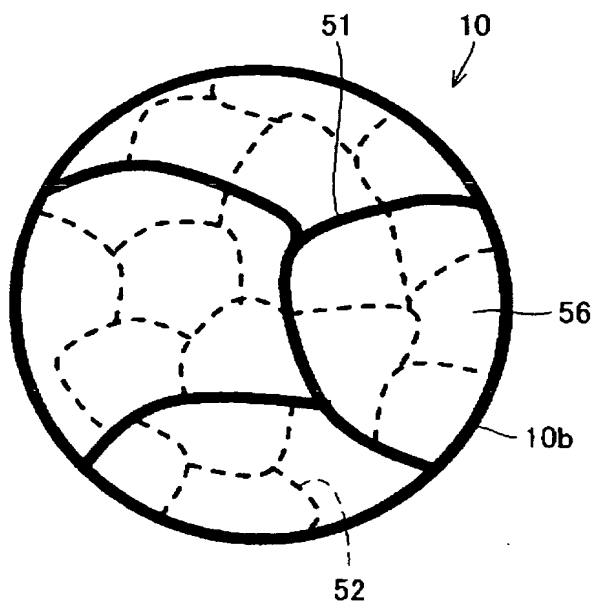
[図3]



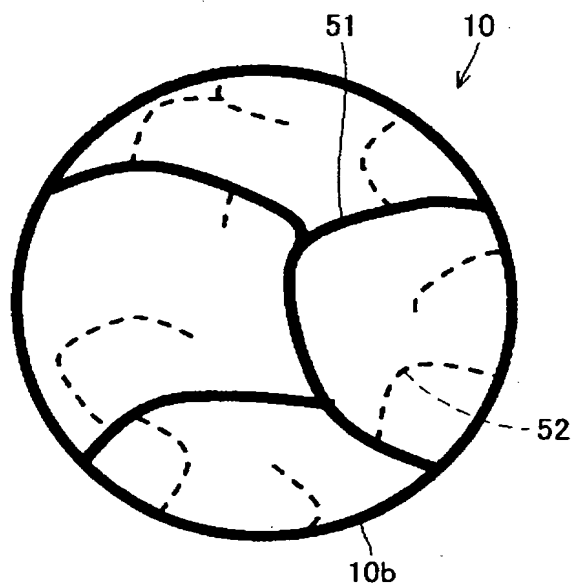
[図4]



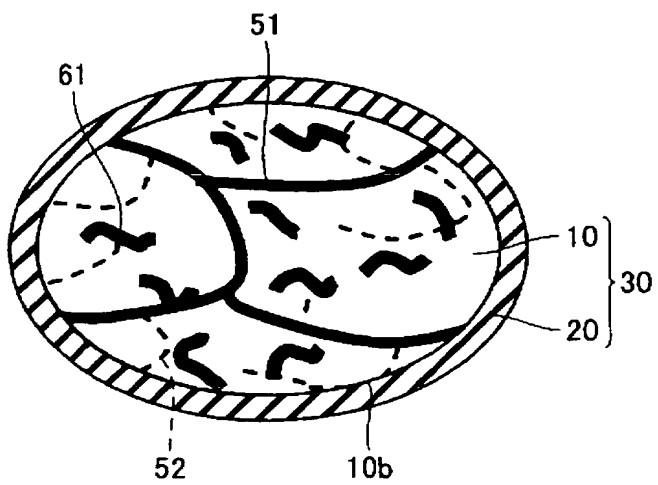
[図5]



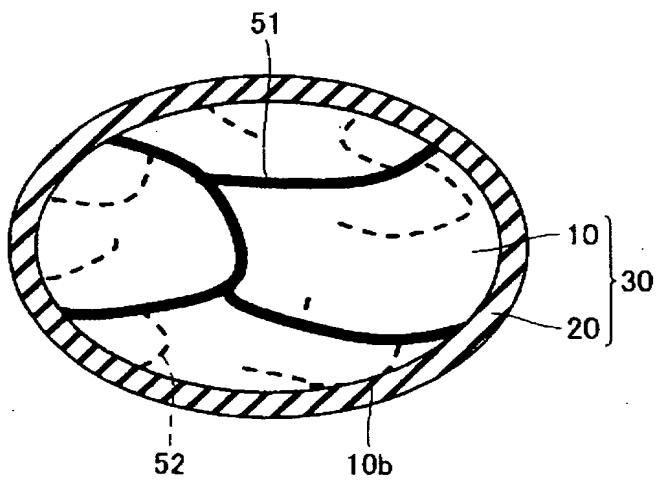
[図6]



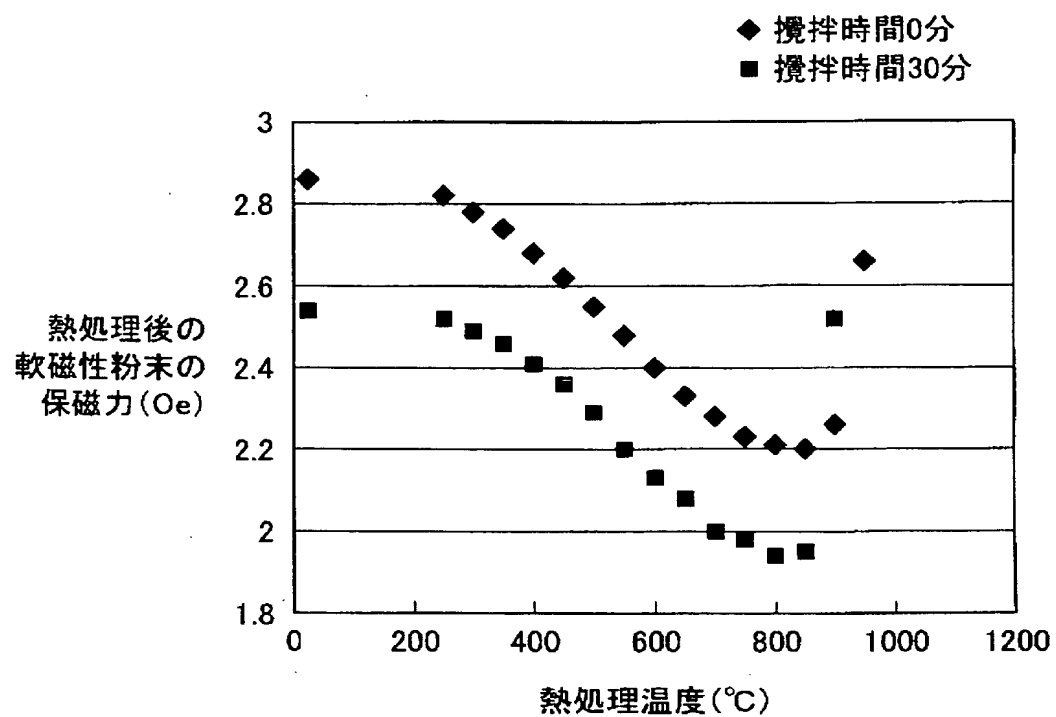
[図7]



[図8]



[図9]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/005885

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> B22F1/00, B22F1/02, B22F3/02, H01F1/33, H01F1/24

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> B22F1/00, B22F1/02, B22F3/02, H01F1/33, H01F1/24

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2004-79943 A (Sekishin Kogyo Kabushiki Kaisha), 11 March, 2004 (11.03.04), Claims; Par. Nos. [0004] to [0006]; Figs. 3, 4 (Family: none)	1-8
Y	JP 63-121602 A (Daido Steel Co., Ltd.), 25 May, 1988 (25.05.88), Claims; page 2, upper left column, lines 14 to 17; page 2, lower left column, lines 2 to 8; page 2, lower right column, lines 12 to 17 (Family: none)	1-8

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
17 May, 2005 (17.05.05)Date of mailing of the international search report  
31 May, 2005 (31.05.05)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/005885

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 8-120393 A (Sumitomo Special Metals Co., Ltd.), 14 May, 1996 (14.05.96), Par. No. [0021] (Family: none)	1
A	JP 8-269501 A (Kobe Steel, Ltd.), 15 October, 1996 (15.10.96), Par. No. [0006] (Family: none)	6

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.<sup>7</sup> B22F1/00, B22F1/02, B22F3/02, H01F1/33,  
H01F1/24

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.<sup>7</sup> B22F1/00, B22F1/02, B22F3/02, H01F1/33,  
H01F1/24

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 2004-79943 A (積進工業株式会社) 2004. 03. 11, 特許請求の範囲, 段落【0004】-【0006】, 図 3, 図4 (ファミリーなし)	1-8
Y	JP 63-121602 A (大同特殊鋼株式会社) 1988. 05. 25, 特許請求の範囲, 第2頁左上欄第14-17行, 第2 頁左下欄第2-8行, 第2頁右下欄第12-17行 (ファミリーな し)	1-8
A	JP 8-120393 A (住友特殊金属株式会社) 1996. 05. 14, 段落【0021】 (ファミリーなし)	1

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

17. 05. 2005

国際調査報告の発送日

31. 5. 2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
郵便番号100-8915  
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

小川 武

4K

3447

電話番号 03-3581-1101 内線 3435



C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 8-269501 A (株式会社神戸製鋼所) 1996. 10. 15, 段落【0006】(ファミリーなし)	6

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☒ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER: \_\_\_\_\_**

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**